

05

## Применение метода спектральной эллипсометрии для характеристики наноразмерных пленок с ферромагнитными слоями

© Х. Хашим<sup>1</sup>, С.П. Сингх<sup>1</sup>, Л.В. Панина<sup>1,2</sup>, Ф.А. Пудонин<sup>3</sup>, И.А. Шерстнев<sup>3</sup>,  
С.В. Подгорная<sup>1</sup>, И.А. Шпетный<sup>4</sup>, А.В. Беклемишева<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский технологический университет „МИСиС“,  
Москва, Россия

<sup>2</sup> Институт проблем проектирования в микроэлектронике РАН,  
Москва, Россия

<sup>3</sup> Физический институт им. Лебедева РАН,  
Москва, Россия

<sup>4</sup> Сумский государственный университет,  
Сумы, Украина

E-mail: hh@science.tanta.edu.eg

Наноструктурированные пленки с ферромагнитными слоями широко используются в наноэлектронике, сенсорных системах и телекоммуникации. Свойства нанопленок могут существенно отличаться от объемных материалов, что обусловлено влиянием интерфейсов, промежуточных слоев и диффузии. В данной работе развиваются методы спектральной эллипсометрии и магнитооптики для исследования оптических параметров и процессов намагничивания для двух- и трехслойных пленок типа Cr/NiFe, Al/NiFe, Cr(Al)/Ge/NiFe на ситалловой подложке для различных толщин слоев Cr и Al. При толщине слоя меньше 20 nm имеется существенная зависимость комплексных коэффициентов преломления от толщины. Процессы перемагничивания двухслойных пленок слабо зависят от толщины верхнего слоя, однако значение коэрцитивности при перемагничивании трехслойных пленок может увеличиться более, чем в два раза, при увеличении толщины верхнего слоя с 4 до 20 nm.

Результаты работы получены в рамках выполнения государственного задания Минобрнауки (задача 3.8022.2017.BY).

DOI: 10.21883/FTT.2017.11.45059.21k

### 1. Введение

Тонкие пленки с магнитными слоями являются важным классом наноструктурируемых материалов для применений в наноэлектронике и спинтронике [1–2]. Значительный интерес к таким системам связан также с возможностью усиления и модификации магнитооптических эффектов, например, за счет возбуждения долгоживущих мод поверхностных плазмонных поляритонов [3], или за счет пространственной диффузии спинов из ферромагнитных слоев [4–6].

Технологические методы производства тонких пленок позволяют контролировать толщины слоев с точностью до нанометра. Однако свойства тонких пленок могут существенно отличаться от массивных материалов [7–8]. Это связано со структурными параметрами, такими как размер кристаллитов, а также с качеством интерфейсов, промежуточных слоев и диффузии. Поэтому стоит задача контроля физических свойств отдельных слоев. Структура многослойных пленок усложняется также необходимостью использовать дополнительные слои (такие как Cr) для защиты функциональных слоев, например от коррозии, что влияет на магнитные свойства.

Эллипсометрические методы являются перспективными для осуществления такого контроля, поскольку они позволяют производить измерения оптических

параметров отдельных нанослоев (и растущего слоя) с высокой точностью и селективностью уже в процессе производства [9–14]. Метод определения оптических и геометрических параметров основан на минимизации функционала, образованного путем сравнения экспериментальных данных и модельных расчетов. В случае магнитных пленок имеет смысл объединение двух подходов: традиционной эллипсометрии и магнитооптики (МО) [15]. При этом для модельных расчетов может быть использован общий подход в рамках представлений матричной оптики.

В данной работе методы магнито-эллипсометрии используются для исследования оптических параметров и процессов намагничивания двух- и трехслойных пленок типа Cr/NiFe, Al/NiFe, Ge/NiFe, Cr(Al)/Ge/NiFe на ситалловой подложке для различных толщин слоев Cr и Al. Оптическая модель двухслойной пленки хорошо описывает экспериментальные спектры, тогда как для трехслойных систем наблюдаются расхождения, что может быть связано с влиянием интерфейсов и необходимостью учитывать процессы диффузии. Определенные из эллипсометрических спектров оптические параметры слоев согласуются со значениями объемных материалов в пределах 10%. Таким образом, продемонстрирована возможность одновременного определения толщин отдельных нанослоев и их комплексных показателей

преломления. Интересно отметить, что кривые намагничивания трехслойных пленок претерпевают существенные изменения в зависимости от толщины верхнего немагнитного слоя.

## 2. Магнито-эллипсометрический анализ многослойных пленок

В эксперименте измеряется отношение комплексных коэффициентов отражения для двух типов поляризации световой волны: в плоскости падения ( $p$ ) и перпендикулярно к ней ( $s$ ). Это отношение принято выражать через эллипсометрические параметры  $\psi$  и  $\Delta$ , которые характеризуют относительное изменение амплитуд для  $p$ - и  $s$ -поляризаций и сдвиг фаз между ними

$$\frac{r_p}{r_s} = \tan \psi \exp i\Delta. \tag{1}$$

В (1)  $r_p, r_s$  — комплексные коэффициенты отражения  $p$ - и  $s$ -поляризованных волн соответственно. Эллипсометрические измерения не являются прямыми. В общем случае необходимо решать обратную задачу, что может представлять значительные трудности. Здесь очень важную роль играет построение изначально адекватной модели, которая уже с помощью регрессивных методов подгоняется под экспериментальные результаты.

Магнито-эллипсометрический анализ многослойной пленки основан на определении характеристической матрицы отдельного слоя, который может иметь намагниченность в плоскости пленки и перпендикулярно плоскости падения (вдоль оси  $x$ ). Это соответствует геометрии экваториального эффекта Керра и дает возможность одновременного определения магнитооптических и эллипсометрических параметров волны, поскольку электромагнитные поля с поляризацией  $s$  и  $p$  остаются собственными функциями системы. Влияние намагниченности слоя в данной геометрии сводится к изменению интенсивности и сдвигу фазы  $p$ -волны, тогда как параметры рассеяния  $s$ -волны не зависят от намагниченности. Такой подход является более удобным для проведения численных расчетов, чем с помощью матрицы Мюллера или матрицы Джонса.

В модели при рассмотрении распространения света в магнитном слое с номером  $j$  магнитооптические эффекты учитываются введением антисимметричного тензора второго ранга для матрицы диэлектрической проницаемости [16,17]

$$\hat{\epsilon}_j = \epsilon_j \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & iQ_j m_{xj} \\ 0 & -iQ_j m_{xj} & 1 \end{pmatrix}. \tag{2}$$

В уравнении (2)  $\epsilon_j = (n_j + ik_j)^2$ ,  $m_{xj}$  и  $Q_j$  являются комплексной диэлектрической проницаемостью, проекцией намагниченности на ось  $x$  и магнитооптической константой  $j$ -го слоя соответственно. Предполагается, что

плоскость падения света является плоскость  $y-z$ , а поверхность образца —  $y-x$ . Для волны с  $p$ -поляризацией коэффициенты отражения  $r_p$  и прохождения  $t_p$  для многослойной системы находится из матричного уравнения

$$\begin{pmatrix} 1 + r_p \\ (-1 + r_p)p_{p1} \end{pmatrix} = \hat{M}_p t_p \begin{pmatrix} 1 \\ -p_{pN} \end{pmatrix}, \tag{3}$$

$$p_{p1} = \frac{\cos \theta}{n_1}, \quad p_{pN} = \frac{\cos \theta_N}{n_N}. \tag{4}$$

В (4)  $\hat{M}_p$  — характеристическая матрица системы слоев,  $\theta$  — угол падения из начальной среды с показателем преломления  $n_1$ ,  $\theta_N$  — угол преломления в последней среде (подложке) с показателем преломления  $n_N$ . Полная характеристическая матрица системы  $\hat{M}_p$  определяется через произведение соответствующих матриц внутренних слоев

$$\hat{M}_p = \prod_{j=2}^{N-1} \hat{M}_{pj}, \tag{5}$$

$$\hat{M}_{pj} = \begin{pmatrix} \cos(\beta_j h_j) - i\delta_j \sin(\beta_j z) & \frac{i}{p_{pj}} \sin(\beta_j h_j) \\ i p_{pj} \sin(\beta_j h_j) & \cos(\beta_j h_j) + i\delta_j \sin(\beta_j z) \end{pmatrix}, \tag{6}$$

$$\beta_j = k_0 n_j \cos \theta_j, \quad p_{jp} = \frac{\cos \theta_j}{n_j},$$

$$\delta_j = iQ_j m_{xj} \tan \theta_j, \quad k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}. \tag{7}$$

В уравнении (7) вводятся следующие параметры  $j$ -го слоя:  $n_j$  — коэффициент преломления,  $\theta_j$  — угол падения,  $h_j$  — толщина слоя,  $\lambda$  — длина волны. Углы  $\theta_j$  определяются следующим образом:

$$n_j \cos \theta_j = \sqrt{n_j^2 - n_1^2 \sin^2 \theta}.$$

Таким образом, в развиваемом подходе магнитные слои учитываются в рамках общих формул, через недиагональный магнитооптический параметр  $Q_j$ .

Для  $s$ -поляризации интенсивность отраженного света не зависит от намагниченности, но эта мода также будет нужна для моделирования эллипсометрических параметров и определения оптических констант. Основные уравнения остаются прежними с заменой  $p_{pj}$  на  $p_{sj} = n_j \cos \theta_j$  и  $\delta_j = 0$ .

В полученные формулы входят диэлектрические функции слоев. Для их определения необходимо использовать модели. Например, в определенном диапазоне длин волн для слоев с затуханием возможна простая аппроксимация (Cauchy–Urbach) [9]

$$n_j(\lambda) = A_{nj} + \frac{B_{nj}}{\lambda^2} + \frac{C_{nj}}{\lambda^4}, \tag{8}$$

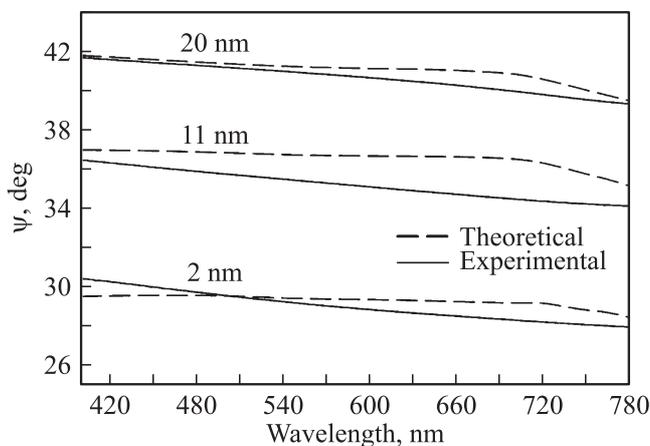
$$k_j(\lambda) = A_{kj} \exp\left(\frac{B_{kj}}{\lambda} - C_{kj}\right). \tag{9}$$

С помощью данной модели удается добиться хорошего совпадения с экспериментальными данными по спектральным характеристикам  $\psi$  и  $\Delta$  и определить оптические параметры слоев.

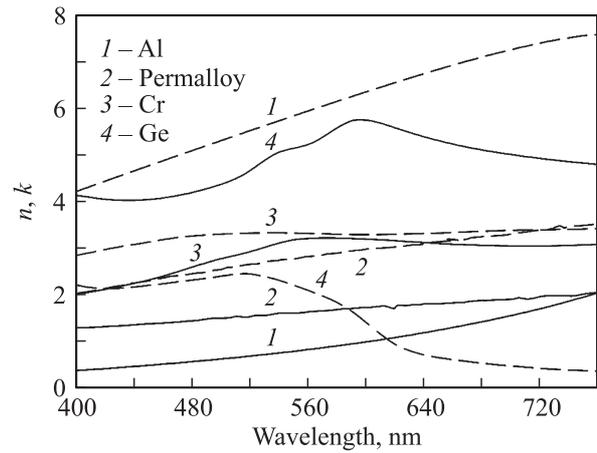
### 3. Материалы и методика измерений

Исследовались системы типа Al/NiFe/, Cr/NiFe/, Ge/NiFe/ и Cr(Al)/Ge/NiFe/ на подложке из ситалла. Варьировалась толщина верхнего немагнитного слоя Al и Cr. Толщина слоев пермаллоя и Ge не изменялась и составляла 20 и 2 нм соответственно. Для получения двух- и трехслойных пленок методом термического испарения в вакууме использовалась установка ВУП-5М (вакуумный универсальный пост). Образцы получали методом послойной конденсации. После осаждения нижнего слоя из пермаллоя марки 79НМ образцы на подложке отжигались в вакууме до температуры  $T = 550$  К для получения более структурно-совершенных образцов. После охлаждения образцов до комнатной температуры наносился следующий слой. Дальнейший отжиг не проводился, чтобы исключить процессы термодиффузии атомов между слоями. Для измерения толщины пленок использовали метод кварцевого резонатора.

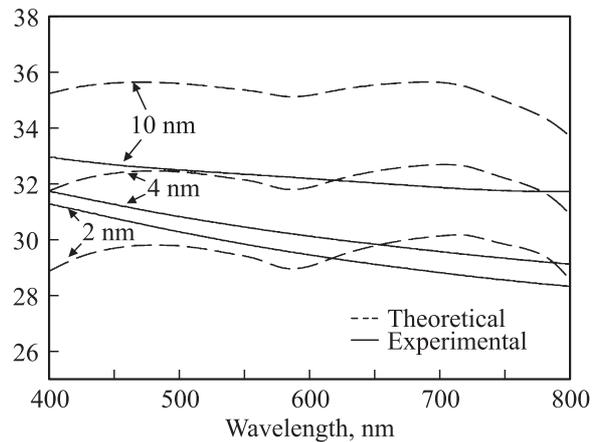
Эллипсометрические параметры измерялись с помощью спектрального эллипсометра (эллипс 1891) на основе статической измерительной схемы в диапазоне длин волн 350–1000 нм. Подгонка с моделью производилась в диапазоне 400–800 нм. На данном этапе магнитооптические (МО) измерения в экваториальной конфигурации проводились отдельно по изменению интенсивности  $p$ -поляризованного света на длине волны 632 нм. Кривые намагничивания также измерялись с помощью вибрационного магнетометра БМ-07 (VSM).



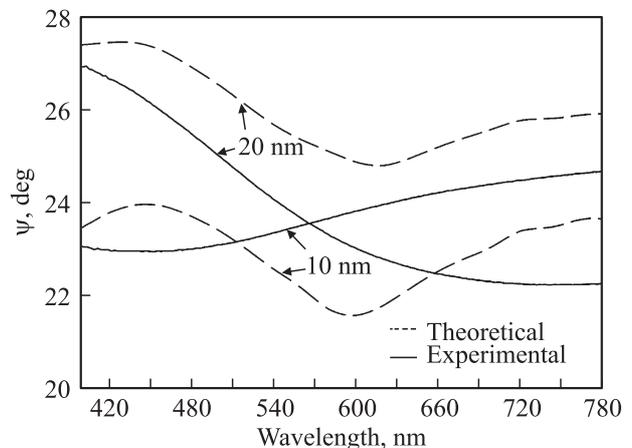
**Рис. 1.** Спектры эллипсометрического параметра  $\psi$  для пленки Al/NiFe/ситалл для различных значений толщины слоя Al. Сплошные линии — эксперимент, пунктирные — двухслойная оптическая модель.



**Рис. 2.** Комплексный показатель преломления исследуемых слоев. Толщина слоев Al, Cr, пермаллоя — 20 нм. Толщина слоя Ge — 2 нм. Сплошными линиями обозначена действительная часть показателя преломления ( $n$ ), пунктирными — мнимая часть ( $k$ ).



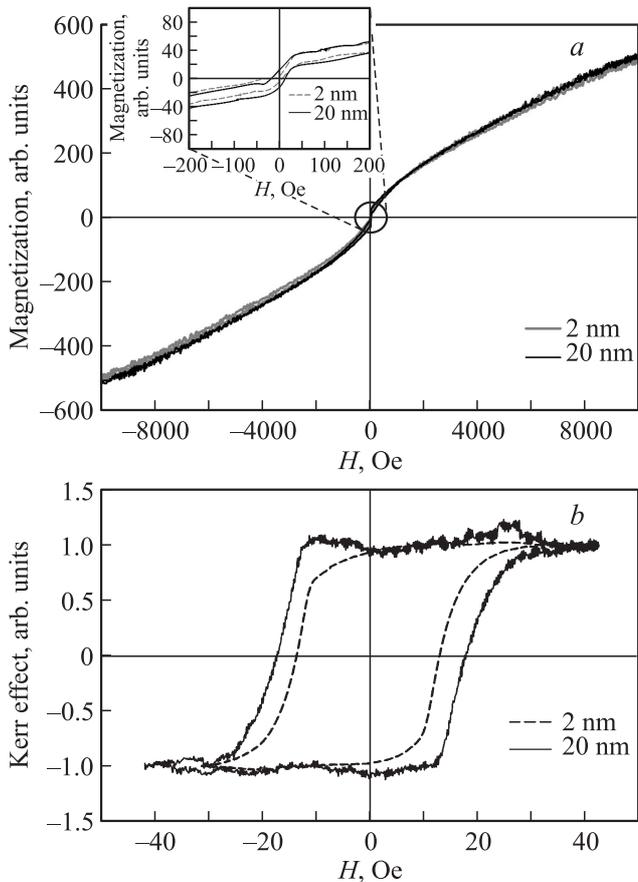
**Рис. 3.** Спектры эллипсометрического параметра  $\psi$  для пленки Al/Ge/NiFe/ситалл для различных значений толщины слоя Al. Сплошные линии — эксперимент, пунктирные — трехслойная оптическая модель.



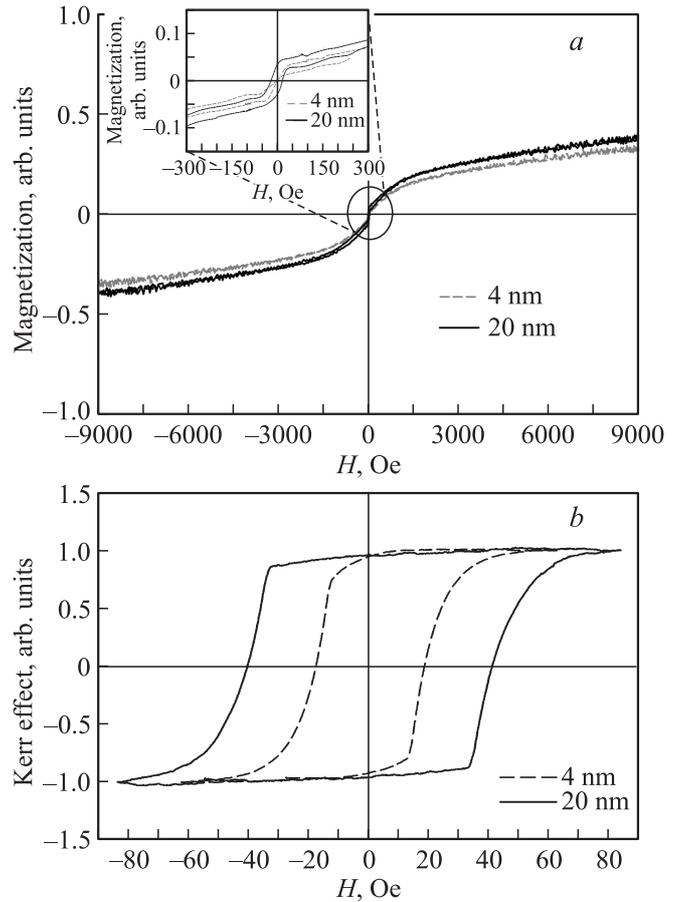
**Рис. 4.** Спектры эллипсометрического параметра  $\psi$  для пленки Cr/Ge/NiFe/ситалл для различных значений толщины слоя Cr. Сплошные линии — эксперимент, пунктирные — трехслойная оптическая модель.

### 4. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены экспериментальные и модельные спектры эллипсометрического параметра  $\psi$  для пленок Al/NiFe/ситалл для различных толщин слоя Al. Показатели преломления слоев были аппроксимированы формулами (7)–(8). Далее минимизировалась квадратичная форма, задающая разницу между экспериментальными и модельными спектрами, и определялись толщины слоев и коэффициенты в разложении (7)–(8), то есть коэффициенты преломления. В начале добивались соответствия эксперимента и модели для пленки с толщиной слоя Al равной 20 nm. Если те же параметры использовать для пленок с более тонкими слоями Al, то наблюдаются некоторые расхождения с экспериментом, что свидетельствует о зависимости оптических параметров от толщины слоя (в пределах 10–15%). Аналогичные выводы относятся и к системам со слоями Si. Значения оптических параметров, определенные из эллипсометрических спектров двухслойных пленок, представлены на рис. 2. Для слоев с толщинами 20 nm эти значения достаточно хорошо (в пределе 5–10%) совпадают с опубликованными данными [18].



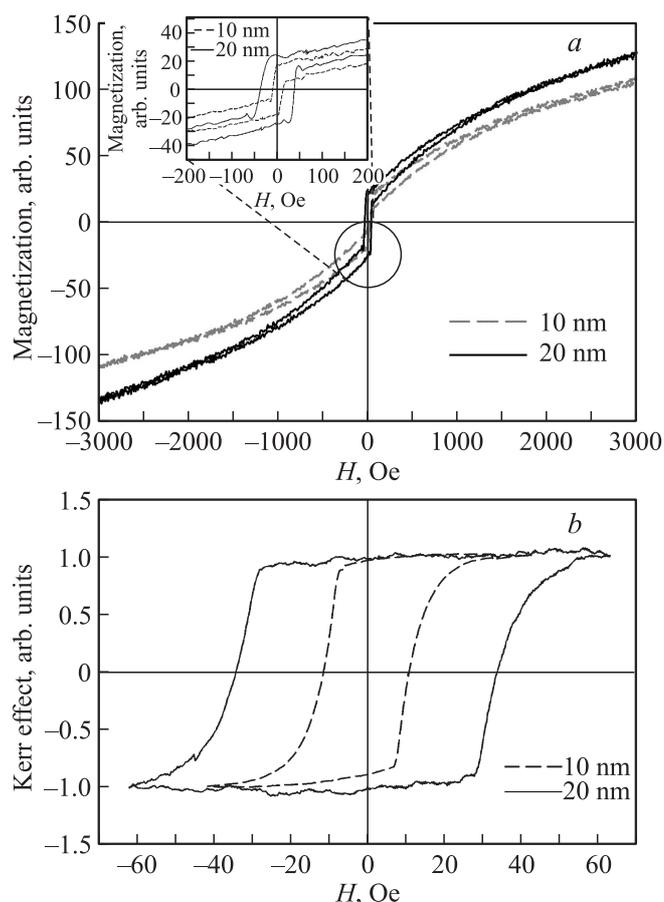
**Рис. 5.** Кривые намагничивания для пленок Al/NiFe/ситалл для различной толщины слоя Al. *a* — VSM-метод, *b* — МО-метод



**Рис. 6.** Кривые намагничивания для пленок Al/Ge/NiFe/ситалл для различной толщины слоя Al. *a* — VSM-метод, *b* — МО-метод.

Наибольшие различия между экспериментальными и модельными данными при использовании оптических параметров, определенных для двухслойных пленок, наблюдаются в трехслойных пленках с промежуточным слоем Ge, как видно из рис. 3 и 4. Это означает, что простая трехслойная модель не соответствует реальным образцам. Возможно имеет место взаимная диффузия и необходимо вводить дополнительные промежуточные слои.

Кривые намагничивания, полученные МО- и VSM-методами для исследуемых систем, представлены на рис. 5–7. Величина коэрцитивности слабо зависит от толщины верхнего слоя в двухслойных пленках, как видно из рис. 5 для системы Al/NiFe/ситалл. Однако эта зависимость становится очень значительной для трехслойных систем с внутренним слоем Ge (рис. 6–7), что также свидетельствует о значительном изменении структуры этих пленок. Следует отметить соответствие поведения намагниченности в области низких полей при измерениях обоими методами, однако МО-сигнал выходит на насыщение, тогда как при измерениях с помощью VSM насыщение не достигается даже в очень больших полях.



**Рис. 7.** Кривые намагничивания для пленок Cr/Ge/NiFe/ситалл для различной толщины слоя Cr. *a* — VSM-метод, *b* — МО-метод

## 5. Заключение

С помощью методов эллипсометрии были исследованы оптические и структурные параметры многослойных пленок типа Al/NiFe/, Cr/NiFe/, Ge/NiFe/, Al(Cr)/Ge/NiFe/ на ситалловой подложке. Для двухслойных систем без внутреннего слоя Ge удается получить хорошее согласие экспериментальных и модельных данных. Трехслойная оптическая модель типа Al/Ge/NiFe/ситалл не соответствует эллипсометрическим спектрам, что свидетельствует о более сложной структуре с возможными промежуточными слоями. Измерения кривых намагничивания для трехслойных пленок МО- и VSM-методами показывает сильную зависимость коэрцитивности от толщины верхнего слоя, что также свидетельствует о структурной модификации.

## Список литературы

- [1] S.A. Wolf. *Science* **294**, 1488 (2001).
- [2] P.P. Freitas, R. Ferreira, S. Cardoso, F. Cardoso. *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 165221 (2007).

- [3] G. Armelles, A. Cebollada, A. García-Martín, M.U. González, *Adv. Opt. Mater.* **1**, 10 (2013).
- [4] S. Demokritov, J.A. Wolf, P. Grünberg. *Europhys. Lett.* **15**, 881 (1991).
- [5] V.A. Skidanov. 20<sup>th</sup> Int. Conference on Magnetism. Barcelona (2015).
- [6] V.A. Skidanov. Program Abstracts. Int. Symposium „Spin Waves“. Saint-Petersburg (2015).
- [7] G. Neuber, R. Rauer, J. Kunze, J. Backstrom, M. Rubhausen. *Thin Solid Films* **455**, 39 (2004).
- [8] S. Visnovsky, R. Lopusnik, M. Bauer, J. Bok, J. Fassbender, B. Hillebrands. *Opt. Express* **9**, 121 (2001).
- [8] Е.А. Ганьшина, В.С. Гушин, С.И. Касаткин, М.А. Муравьев. *ФТТ* **46**, 864 (2004).
- [9] H. Fujiwara. *Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications*. John Wiley & Sons Ltd, 170 (2007).
- [10] L. Pereira, H.Águas, E. Fortunato, R. Martins. *App. Surf. Sci.* **253**, 339 (2006).
- [11] E. Langereis, S.B.S. Heil, H.C.M. Knoops, W. Keuning, M.C.M. van de Sanden, W.M.M. Kessels. *J. Phys. D* **42**, 073001 (2009).
- [12] В.А. Швец, Е.В. Спесивцев, С.В. Рыхлицкий, Н.Н. Михайлов. *Рос. нанотехнологии* **4**, 72 (2009).
- [13] J.N. Hilfiker. In: *In situ spectroscopic ellipsometry (SE) for characterization of thin film growth* / Eds.: G. Koster, G. Rijnders. Woodhead Publishing Limited (2011). P. 99.
- [14] K. Postava, D. Hrabovsky, J. Hamrlov, J. Pistora, A. Wawro, L.T. Baczewski, I. Sveklo, A. Maziewski. *Thin Solid Films* **519**, 2627 (2011).
- [15] G. Neuber, R. Rauer, J. Kunze, J. Backstrom, M. Rubhausen. *Thin Solid Films*, **455–456**, 39 (2004).
- [16] R.P. Hunt. *J. Appl. Phys.* **38**, 1652 (1967).
- [17] Y.J. Yang, M.R. Scheinfein. *J. Appl. Phys.* **74**, 6810 (1993).
- [18] E.D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids III*. Academic Press, San Diego, CA (1998). 68 p.